

19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

10560.2  
Offenlegungsschrift  
DE 195 33 815 A 1

51 Int. Cl.<sup>8</sup>:  
**A46 B 9/04**  
A 46 D 1/00  
D 01 D 5/253  
A 61 C 17/00

21 Aktenzeich n: 195 33 815.4  
22 Anmeldetag: 13. 9. 95  
23 Offenlegungstag: 20. 3. 97

71 Anmelder:  
Coronet-Werke GmbH, 69483 Wald-Michelbach, DE  
74 Vertreter:  
Lichtl und Kollegen, 76227 Karlsruhe

72 Erfinder:  
Weihrauch, Georg, 69483 Wald-Michelbach, DE

56 Für die Beurteilung der Patentfähigkeit  
in Betracht zu ziehende Druckschriften:

DE-AS 12 22 888  
DE-AS 11 40 901  
DE 43 43 368 A1  
DE 43 11 186 A1  
DE 31 16 189 A1  
DE-OS 16 60 648  
DE 285 01 338 U1  
DE 93 19 214 U1  
DE 85 22 986 U1  
DD 2 07 854

64 Zahnbürste und Verfahren zu ihrer Herstellung

67 Eine Zahnbürste besitzt einen Bürstenkopf und daran befestigte, gegebenenfalls zu Bündeln zusammengefaßte Borsten aus Kunststoff, von denen zumindest einige an ihrer Mantelfläche ein Profil aufweisen. Um bei unveränderten Festigkeitseigenschaften der Borsten eine erhöhte Reinigungs- und Massagewirkung zu erzielen, weisen die Borsten als Profil eine Wendel auf. Dabei können die Borsten aus einem Kern und wenigstens einer über die Mantelfläche verlaufenden Wendel oder aus wenigstens zwei verdrehten und gegebenenfalls miteinander unlösbar verbundenen Monofilen bestehen. Zur Herstellung der Zahnbürste kann ein profiliertes Monofil oder ein Monofil mit achsparallelen Rippen extrudiert, anschließend verdreht und die Drillung fixiert werden. Es ist auch möglich, daß ein Monofil aus einem Kunststoff zusammen mit auf dessen Mantelfläche verlaufenden Rippen aus einem Kunststoff anderer Eigenschaften koextrudiert, anschließend der koextrudierte Verbund verdreht und die Drillung fixiert wird.

DE 195 33 815 A 1

DE 195 33 815 A 1

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft eine Zahnbürste mit einem Bürstenkopf und daran befestigten gegebenenfalls zu Bündeln zusammengefaßten Borsten aus Kunststoff, von denen zumindest einige an ihrer Mantelfläche ein Profil aufweisen, sowie ein Verfahren zur Herstellung einer Borste für eine Zahnbürste. In gleicher Weise ist die Erfindung für einen Interdentalreiniger einsetzbar, der ausdrücklich mit umfaßt sein soll.

Bei Zahnbürsten — Hand oder Elektrozahnbürsten — bestehen die Borsten üblicherweise aus extrudierten Monofilen mit kreisförmigem Querschnitt. Auch andere Querschnitte sind schon vorgeschlagen worden. Die Reinigungswirkung solcher Zahnbürsten, wie auch eine erwünschte Massagewirkung der Gingiva erfolgt fast ausschließlich durch die Borstenenden, die zur Vermeidung von Verletzungen und Rezessionen der Gingiva verrundet sind. Insoweit hat das Borstenende zwei an sich gegenläufige Forderungen zu erfüllen, nämlich einerseits eine ausreichende Bürstwirkung auf den Zahn auszuüben, andererseits eine zurückhaltende Massage der Gingiva zu bewirken. Die im Vordergrund stehende Reinigungswirkung der Zahnflächen und Zahnzwischenräume ist deshalb kompromißbedingt unzureichend.

Es hat deshalb nicht an Versuchen gefehlt, die Mantelfläche der Borste durch Profilierung in den Bürstprozeß einzubeziehen und dadurch die Reinigungswirkung zu erhöhen. So ist es bekannt (DE 31 16 189), die Borste mit unterschiedlichen, und auf Abstand angeordneten Verdickungen zu versehen, die weitere Bürstkanten bilden. Eine solche Borste läßt sich rationell kaum fertigen, wenn man bedenkt, daß Borsten üblicherweise durch Spinnen bzw. Extrudieren hergestellt werden. Es lassen sich zwar theoretisch auch Querschnittsveränderungen in Extrusionsrichtung verwirklichen, wie eine solche Borste auch durch Spritzgießen hergestellt werden könnte. Die beim Extrudieren erzeugten Monofile müssen anschließend noch veredelt, nämlich verstreckt und thermisch stabilisiert werden, um der Borste die gewünschte Biegefähigkeit und das erforderliche Wiederaufrichtvermögen zu verleihen. Ein solches Verstrecken würde bei gespritzten oder extrudierten Borsten mit auf Abstand angeordneten Verdickungen nur dazu führen, daß die Borste im Bereich der engsten Querschnitte zwischen den Verdickungen gestreckt und eingeschnürt würde, während die Verdickungen unbeeinflusst blieben. Eine solche Borste wäre völlig untauglich. Selbst wenn es aber gelänge, eine solche Borste mit den notwendigen Eigenschaften auszustatten, bestünde die Gefahr, daß sich die Borste mit den Verdickungen in den Zahnzwischenräumen verklemmt und bei Zug entweder abreißt oder am Bürstenkopf ausreißt oder die Gingiva im Zahnzwischenraum, wo sie aufgrund fehlender Zahnhalsadhäsion besonders gefährdet ist, verletzt wird.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Zahnbürste mit profilierten Borsten vorzuschlagen, die bei unveränderten Festigkeitseigenschaften der Borsten eine erhöhte Reinigungs- und Massagewirkung hat und die preiswert herstellbar sind.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß die Borsten als Profil eine Wendel aufweisen.

Eine solch Borste läßt sich durch Extrudieren herstellen und kann in gleicher Weise veredelt werden, wie eine herkömmliche Borste. Sie weist den Vorteil auf, daß zusätzlich zum Borstenende der Kopf der Wendel bzw. dessen Übergang in die Flanken und die Flanken selbst

zusätzliche Bürstkanten bildet, die die Reinigungswirkung auf die Zahnflächen und Zahnzwischenräume verstärken, ohne die Gingiva zu gefährden. Auch beim Eindringen einer solchen Borste in die Zahnzwischenräume kann es nicht zum Verklemmen der Borste kommen, da keine radialen Einschnürungen vorhanden sind. Zudem kann sich die Wendel bei Zug aufdrillen, so daß auf die Borste jedenfalls keine Auszugskräfte zur Wirkung kommen, die höher wären als bei üblichen Borsten. Auch dann, wenn eine solche Borste mit ihrem Mantel über die Gingiva streicht, entfaltet sie aufgrund der Wendel eine Massagewirkung.

Es ist zwar bei Walzenbürsten für Autowaschanlagen bekannt (DE-U-93 19 214), profilierte Borsten zu verwenden, die außerdem verdreht sind. Hier soll jedoch mit einer Wendel mit einer extrem steilen Steigung von mehreren Zentimetern Länge der Borste eine schonende Behandlung erfolgen und es werden nicht die gegenläufigen Forderungen (Bürsten und zurückhaltendes Massieren) erfüllt.

Mit Vorzug weist wenigstens ein Teil der Borsten eine ein- oder mehrgängige Wendel auf, wodurch die beim Reinigen wirksamen Flächen vergrößert werden und zugleich verschiedene Wirkungsrichtungen entstehen.

Eine weitere bevorzugte Ausführung zeichnet sich dadurch aus, daß die Borsten aus einem Kern und wenigstens einer über die Mantelfläche verlaufenden Wendel bestehen. Der Kern verleiht der Bürste die üblichen Eigenschaften (Biegefähigkeit, Wiederaufrichtvermögen etc.).

Es ist weiterhin von Vorteil, wenn die Wendel einen trapezförmigen Querschnitt aufweist, wobei der Kopf der Wendel vorzugsweise abgeflacht oder abgerundet ist, um keine scharfen Kanten entstehen zu lassen. Dies kann durch mechanische oder thermische Bearbeitung erfolgen.

Für bestimmte Einsatzgebiete muß sichergestellt sein, daß ein Benutzer Bürsten mit insbesondere abrasiv wirkenden spiraligen Borsten als solche erkennt und diese nicht irrtümlicherweise zur Pflege empfindlichen Zahnfleisches verwendet. In Weiterbildung der Erfindung ist deshalb vorgesehen, daß die zumindest eine Rippe sich farblich von dem Kern unterscheidet.

Vorzugsweise bestehen der Kern und die zumindest eine Rippe aus unterschiedlichen Materialien. Somit kann die zumindest eine Rippe an bestimmte Einsatzbedingungen insbesondere hinsichtlich ihrer Härte angepaßt werden. Auch hierbei kann dem Benutzer durch eine farblich unterschiedliche Gestaltung des Kerns und der Rippen ein Hinweis auf die Bürsteigenschaften der jeweiligen Bürste gegeben werden.

Bei bestimmten Bürsten ist es notwendig, daß die Borsten eine vorbestimmte Steifigkeit oder Elastizität besitzen müssen. Eine Anpassung der Steifigkeit läßt sich in bevorzugter Ausgestaltung der Erfindung erzielen, wenn der Kern einen Innenbereich und einen den Innenbereich umgebenden Mantel aus unterschiedlichen Materialien aufweist. Mittels Variation der Materialien für den Innenbereich und den Mantel läßt sich die Steifigkeit und die Elastizität der Borsten in gewünschter Weise einstellen. Die auf dem Mantel verlaufenden Rippen können entweder aus dessen Material oder einem davon unterschiedlichen Material bestehen.

Die Borsten können aus einem profilierten und anschließend verdrehten Monofil bestehen. Statt dessen können die Borsten auch aus zwei oder mehr miteinander verdrehten Monofilen bestehen, die unlösbar miteinander

ander verbunden sind.

Die Bürstwirkung ist unter anderem abhängig von dem Maß der Verdrillung bezogen auf die Nutzlänge einer Borste bzw. des Borstenmaterials, d. h. von der Ganghöhe der sich infolge der Verdrillung bildenden Wendel. Es hat sich gezeigt, daß die Ganghöhe der Wendel nicht größer als die doppelte Nutzlänge der Borste sein sollte, so daß entlang der Nutzlänge eine um 180° umlaufende Wendel vorhanden ist. Üblicherweise wird die Wendel jedoch eine kleinere Ganghöhe aufweisen, die bis zu der Größe des Durchmessers des Borstenmaterials betragen kann.

In Weiterbildung der Erfindung kann vorgesehen sein, daß das Monofil bzw. die Monofile aus einem elastischen Kunststoff bestehen. Auf diese Weise lassen sich die aus den Borstenmaterial hergestellten Borsten in Längsrichtung dehnen, was eine Verringerung ihres Durchmessers mit sich bringt, so daß sie in einfacher Weise beispielsweise in einen Zahnzwischenraum eingeführt oder aus diesem entnommen werden können.

Die Borsten können im Bedarfsfall auch nur auf einem Teil ihrer Länge eine Wendel aufweisen. Um eine Bürste in ihrer Wirkung an vorgegebene Rahmenbedingungen anpassen zu können, lassen sich spiralförmige Borsten mit Borsten anderer Konfiguration kombinieren und zusammen verarbeiten.

Zur Herstellung einer Borste für eine Zahnbürste des vorgenannten Aufbaus schlägt die Erfindung vor, daß ein Monofil mit achsparallelen Rippen extrudiert, anschließend verdrillt und schließlich die Drillung fixiert wird. Die Borsten lassen sich dann durch Ablängen von einem Endlosstrang herstellen.

Ein anderes Verfahren besteht darin, daß ein Monofil aus einem Kunststoff zusammen mit auf dessen Mantelfläche verlaufenden Rippen aus einem Kunststoff anderer Eigenschaften koextrudiert, anschließend der koextrudierte Verbund verdrillt und schließlich die Drillung fixiert wird.

Auch dieses Verfahren ermöglicht eine Endloserstellung des Borstenmaterials. Ferner kann der die Wendel bildende Kunststoff dem Verwendungszweck angepaßt werden. Beispielsweise kann der Kern aus dem für Borsten üblichen Kunststoff bestehen, während der Kunststoff für die Wendel weicher oder härter eingestellt oder mit abrasiven Füllstoffen versehen sein kann. Auch kann der die wendelförmigen Rippen bildende Kunststoff anders eingefärbt sein, um eine funktionale Anzeige zu ermöglichen.

Darüber hinaus kann auch der Kern aus bereichsweise unterschiedlichen Materialien bestehen, um die Borste ihrem Verwendungszweck anzupassen. Dabei besitzt der Kern einen Innenbereich und einen den Innenbereich umgebenden Mantel aus unterschiedlichen Materialien, die koextrudiert werden.

Eine andere Möglichkeit der Herstellung besteht darin, daß wenigstens zwei Monofile extrudiert, anschließend verdrillt und die Drillung fixiert wird. Dabei können die Monofile während des Extrudierens oder nach dem Verdrillen unlösbar miteinander verbunden werden.

Die erfindungsgemäß ausgebildete Borste gibt ferner die Möglichkeit, daß das extrudierte Monofil bzw. der koextrudierte Verbund vor dem Verdrillen verstreckt und gegebenenfalls stabilisiert wird, um der Borste mit der Wendel die von Borsten für Zahnbürsten geforderten Eigenschaften zu verleihen.

Schließlich ist es — wie bei herkömmlichen Borsten — von Vorteil, wenn das Monofil bzw. der koextrudier-

te Verbund nach dem Verdrillen thermisch stabilisiert und danach für 24 bis 48 h gelagert wird.

Bei Zahnbürsten müssen die Borstenenden nach dem Beschneiden verrundet werden, um Schäden an den Zähnen und Verletzungen der Gingiva zu vermeiden. Dies geschieht mit Vorteil durch oberflächiges Aufschmelzen der Borstenenden, da die Enden der dünnwandigen Wendel vor dem Kern schmelzen und sich folglich die scharfen Kanten zuerst zurückbilden.

Eine nach einem der vorgenannten Verfahren hergestellte Borste ist auch hervorragend als oder für Interdentalreiniger geeignet. Bei einem Interdentalreiniger ergeben sich weitere Vorteile, wenn er nur in einem Teilbereich seiner Länge verdrillt ist. Der unverdrillte Teilbereich besitzt geringere Querschnittsabmessungen und läßt sich somit leichter in einen Zahnzwischenraum einführen. Das Einführen kann noch weiter erleichtert werden, wenn der unverdrillte Teilbereich zumindest abschnittsweise einen beispielsweise durch Verpressen abgeflachten Querschnitt aufweist.

Um eine einwandfreie und auszugsfeste Befestigung der Borsten am Bürstenkörper zu gewährleisten ist ferner vorgesehen, daß die Borsten einzeln oder gruppenweise an ihrem befestigungsseitigen Ende zu einem Kopf aufgeschmolzen und mit diesem im Bürstenkörper verankert werden. Hierdurch erhält das befestigungsseitige Ende einen gleichförmigen kugeligen oder linsenförmigen Querschnitt, der eine einwandfreie Verankerung im Bürstenkopf ermöglicht.

Nachstehend ist die Erfindung anhand einiger in der Zeichnung wiedergegebener Ausführungsbeispiele beschrieben. In der Zeichnung zeigen:

Fig. 1 eine vergrößerte Detailansicht einer Borste;

Fig. 2 bis 4 verschiedene Querschnittsformen eines extrudierten Monofils und

Fig. 5 bis 10 verschiedene Querschnittsformen eines koextrudierten Verbundes.

Die in Fig. 1 wiedergegebene Borste 1 besteht aus einem kreiszylindrischen Kern 2, auf dessen Mantelfläche eine zweigängige Wendel 4 mit den beiden Wendeln 5, 6 angeordnet ist. Jede Wendel 5, 6 weist einen abgeflachten Kopf 7 bzw. 8 auf. Eine solche Borste für Zahnbürsten kann beispielsweise einen Außendurchmesser im Bereich von 0,2 mm besitzen, wobei der Kern 2 einen Durchmesser im Bereich von 0,1 bis 0,15 mm aufweist. Die Wendel weist bei der für Zahnbürsten üblichen Länge der Borsten bis zu 1,5 cm eine Gangzahl von 2 bis 6 auf.

Die Borste gemäß Fig. 1 läßt sich auf verschiedene Art herstellen. Beispielsweise kann gemäß Fig. 2 ein Monofil 9 mit einem Kern 10 und zwei diametral angeordneten Rippen 11, 12 extrudiert, anschließend verstreckt, daraufhin verdrillt und schließlich thermisch fixiert werden, so daß eine zweigängige Wendel gemäß Fig. 1 entsteht. Fig. 3 zeigt ein extrudiertes Monofil 9 mit etwa dreieckförmigem Querschnitt, das aus einem Kern 13 und drei Rippen 14, 15 und 16 gebildet ist. Fig. 4 zeigt ein Monofil 9 mit kreuzförmigen Querschnitt, das wiederum einen Kern 17 und vier symmetrisch angeordnete Rippen 18, 19, 20 und 21 aufweist. Die Drillachse fällt bei allen Ausführungsbeispielen mit der Achse des Kerns 2 zusammen. Das Monofil kann auch einen im wesentlichen rechteckigen oder quadratischen Querschnitt aufweisen, wobei der mittelpunktsnahe Bereich den Kern und die vier Eckbereiche die Rippen bilden.

Die Fig. 5 bis 7 zeigen im wesentlichen gleiche Querschnittsformen wie in den Fig. 2 bis 4, jedoch sind in diesem Fall die kreiszylindrischen Kerne 10, 13, 17 mit

den Rippen 11, 12 bzw. 14 bis 16 bzw. 18 bis 21 koextrudiert. Das extrudierte Monofil bzw. der koextrudierte Verbund wird anschließend verstreckt, verdreht und thermisch stabilisiert und für 1 bis 2 Tage gelagert.

In den Fig. 8 bis 10 sind ähnliche Querschnittsformen wie in den Fig. 5 bis 7 dargestellt, wobei jedoch die Kerne 10, 13, 17 einen radial innen angeordneten Innenbereich 10a, 13a bzw. 17a und einen den Innenbereich umgebenden Mantel 10b, 13b bzw. 17b besitzen. Der Innenbereich und der dazugehörige Mantel bestehen aus unterschiedlichen Materialien. Die Rippen 11, 12 bzw. 14 bis 16 bzw. 18 bis 21 bestehen aus einem weiteren Material.

Der Innenbereich ist mit dem Mantel und den Rippen koextrudiert und anschließend in genannter Weise bearbeitet.

Wie insbesondere aus den Fig. 2 bis 10 ersichtlich, ist — wie bereits mit Bezug auf Fig. 1 beschrieben — der Kopf der Rippen abgeflacht bzw. verrundet. Nach dem Ablängen der Borsten von dem Endlosmaterial werden die nutzungsseitigen Enden verrundet, vorzugsweise durch oberflächiges Anschmelzen, während die befestigungsseitigen Enden einzeln oder gruppenweise zu einem Kopf aufgeschmolzen werden.

#### Patentansprüche

1. Zahnbürste mit einem Bürstenkopf und daran befestigten, gegebenenfalls zu Bündeln zusammengefaßten Borsten aus Kunststoff, von denen zumindest einige an ihrer Mantelfläche ein Profil aufweisen, dadurch gekennzeichnet, daß die Borsten (1) als Profil eine Wendel aufweisen.
2. Zahnbürste nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß wenigstens ein Teil der Borsten (1) eine ein- oder mehrgängige Wendel (5, 6) aufweist.
3. Zahnbürste nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Borsten (1) aus einem Kern (2) und wenigstens einer über die Mantelfläche (3) verlaufenden Wendel (4) bestehen.
4. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Wendel (4) einen im wesentlichen trapezförmigen Querschnitt aufweist.
5. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Wendel (4) an ihrem Kopf abgeflacht oder abgerundet ist.
6. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 3 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Wendel und der Kern unterschiedliche Farben aufweisen.
7. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 3 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Wendel und der Kern aus unterschiedlichen Materialien bestehen.
8. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 3 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß der Kern einen Innenbereich (10a; 13a; 17a) und einen den Innenbereich umgebenden Mantel (10b; 13b; 17b) aus unterschiedlichen Materialien aufweist.
9. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Borsten aus einem profilierten und anschließend verdrehten Monofil (9) bestehen.
10. Zahnbürste nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Borste aus wenigstens zwei verdrehten und gegebenenfalls miteinander unlösbar verbundenen Monofilen besteht.
11. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Ganghöhe der

Wendel nicht größer als die doppelte Nutzlänge der Borste und nicht kleiner als der Durchmesser der Borste ist.

12. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß das Monofil bzw. die Monofile aus elastischem Kunststoff bestehen.

13. Zahnbürste nach einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß die Borste (1) nur auf einem Teil ihrer Länge eine Wendel aufweist.

14. Verfahren zur Herstellung einer Borste aus Kunststoff für eine Zahnbürste nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß ein profiliertes Monofil (9) oder ein Monofil mit achsparallelen Rippen (11, 12; 14 bis 16; 18 bis 21) extrudiert, anschließend auf zumindest einem Teil seiner Länge verdreht und die Drillung fixiert wird.

15. Verfahren zur Herstellung einer Borste aus Kunststoff für eine Zahnbürste nach einem der Ansprüche 1 bis 9 oder für einen Interdentalreiniger, dadurch gekennzeichnet, daß ein Monofil aus einem Kunststoff zusammen mit auf dessen Mantelfläche verlaufenden Rippen aus einem Kunststoff anderer Eigenschaften koextrudiert, anschließend der koextrudierte Verbund auf zumindest einem Teil seiner Länge verdreht und die Drillung fixiert wird.

16. Verfahren zur Herstellung einer Borste aus Kunststoff für eine Zahnbürste nach Anspruch 11 oder einen Interdentalreiniger, dadurch gekennzeichnet, daß wenigstens zwei Monofile extrudiert, anschließend verdreht und die Drillung fixiert wird.

17. Verfahren nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Monofile während des Extrudierens oder nach dem Verdrehen unlösbar miteinander verbunden werden.

18. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 17, dadurch gekennzeichnet, daß das (die) extrudierte(n) Monofil(e) bzw. der koextrudierte Verbund vor dem Verdrehen verstreckt wird (werden).

19. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 18, dadurch gekennzeichnet, daß das (die) Monofil(e) bzw. der koextrudierte Verbund nach dem Verdrehen thermisch stabilisiert wird (werden).

20. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 19, dadurch gekennzeichnet, daß das (die) verdrehte(n) Monofil(e) bzw. der verdrehte Verbund nach dem thermischen Stabilisieren bei gegebenenfalls erhöhter Temperatur gelagert wird (werden).

21. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 20, dadurch gekennzeichnet, daß jede Borste an ihrem nutzungsseitigen Ende durch oberflächiges Aufschmelzen verrundet wird.

22. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß die Borsten einzeln oder gruppenweise an ihrem befestigungsseitigen Ende zu einem Kopf aufgeschmolzen und mit diesem im Bürstenkörper verankert werden.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

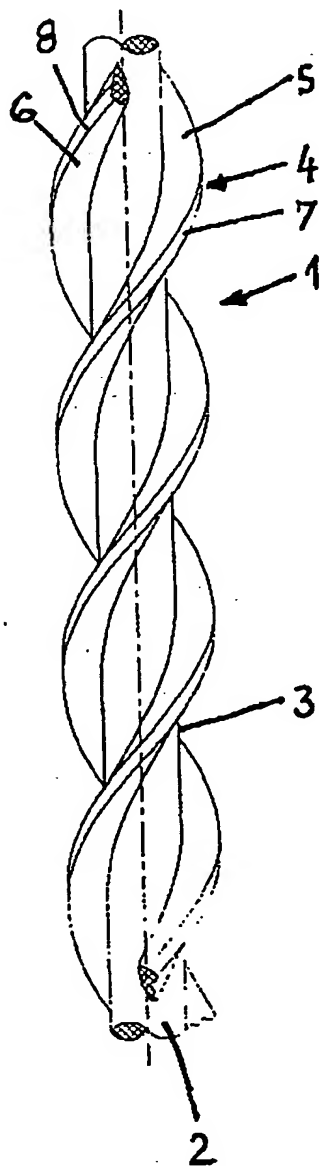


Fig. 1

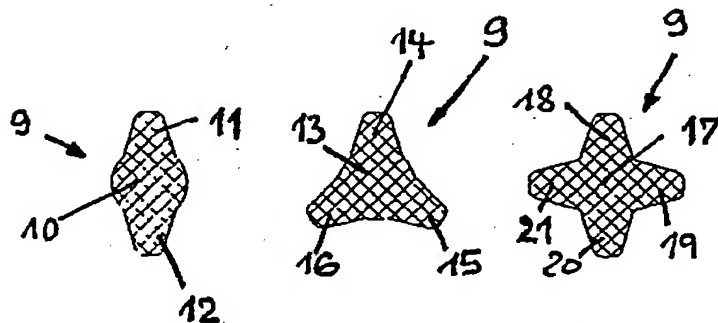


Fig. 2

Fig. 3

Fig. 4

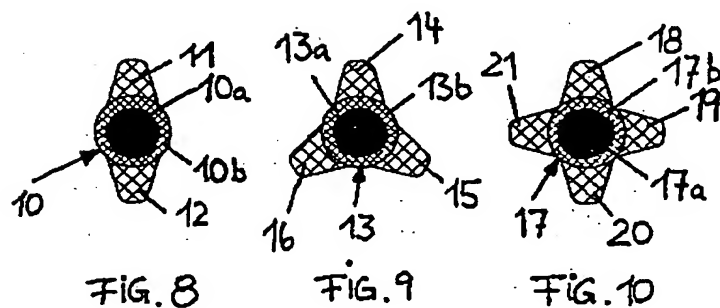


FIG. 8

FIG. 9

FIG. 10

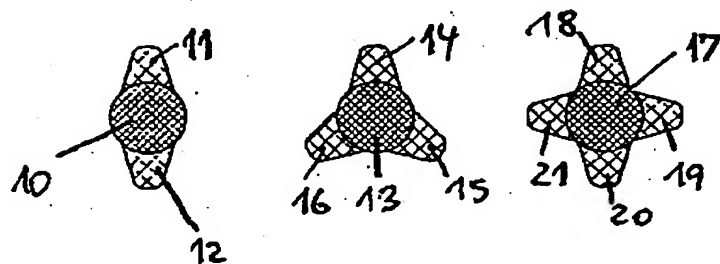


Fig. 5

Fig. 6

Fig. 7

100

1000000

1000000

1000000

1

1000000

1

1